

BEST AVAILABLE COPY

Rec'd PCT/PTC 28 JUN 2004  
PCT/JP 02/13453

06.03.03

日本国特許庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2001年12月27日

出願番号

Application Number:

特願2001-398316

[ST.10/C]:

[JP2001-398316]

出願人

Applicant(s):

日立化成工業株式会社

REC'D 28 MAR 2003

WIPO

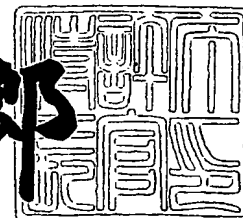
PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 2月25日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3010761

【書類名】 特許願

【整理番号】 13102640

【提出日】 平成13年12月27日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/02  
H01M 8/10

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ及び燃料電池用セパレータを用いた燃料電池

【請求項の数】 14

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県日立市鮎川町三丁目3番1号 日立化成工業株式会社 山崎事業所内  
【氏名】 鈴木 孝幸

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県日立市鮎川町三丁目3番1号 日立化成工業株式会社 山崎事業所内  
【氏名】 田代 了嗣

【特許出願人】  
【識別番号】 000004455  
【氏名又は名称】 日立化成工業株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100071559  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 若林 邦彦  
【電話番号】 03-3259-6371

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 010043  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【物件名】 図面 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ及び燃料電池用セパレータを用いた燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 曲げ破断歪みが 0.5%以上である燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 圧縮弾性率が 20 GPa 以下である請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 ショア硬度が 20～50 の範囲である請求項 1 又は 2 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】 圧縮弾性率が 20 GPa 以下である燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】 ショア硬度が 20～50 の範囲である請求項 4 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】 ショア硬度が 20～50 の範囲である燃料電池用セパレータ。

【請求項 7】 セパレータが、リブ部及び平坦部を有する請求項 1～6 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 8】 セパレータが、黒鉛及び樹脂を含む成形体である請求 1～7 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 9】 黒鉛が、膨張黒鉛である請求項 8 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 10】 膨張黒鉛が、膨張黒鉛シート粉碎粉である請求項 9 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 11】 樹脂が、熱硬化性樹脂である請求項 8 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 12】 セパレータが、リブ部及び平坦部以外に穴部を有する請求項 1～11 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 13】 請求項 1～12 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータを有してなる燃料電池。

【請求項 14】 固体高分子型である請求項 13 記載の燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池用セパレータ及び燃料電池用セパレータを用いた燃料電池に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

燃料電池は近年、化石燃料の消費拡大による地球温暖化防止策、省エネルギー対策等の観点から非常に注目され、特に固体高分子型の燃料電池について、定置型発電機、燃料電池自動車等への応用を目的に国内外の研究機関や企業で精力的な研究開発が進められている。

## 【0003】

固体高分子型の燃料電池は、高分子イオン交換膜からなる電解質膜を触媒電極で挟み、さらにその外側にセパレータと呼ばれる板状の部材を配置した単セルが基本単位となり、この電解質膜の片面に水素、メタノール等の燃料を供給し、反対の面には酸化剤である空気などを供給して、このときに生じる電気化学反応により電極間に発生する電気エネルギーを取り出すものである。なお、単セルの起電力は数百mVであることから、実際の機器に燃料電池を応用する際には、数百セルを積層したスタックの状態とすることが必要である。

## 【0004】

この燃料電池の構成部材の一つであるセパレータは、燃料及び酸化剤を定量的かつ安定に面内に供給するための細かい流路が形成されている。

また、セパレータは発生する電気エネルギーを外部に伝達するための導電性、燃料と酸化剤が混合しないためのガス不透過性、単セルを多数積層し、圧縮、締結したときに破損しないための機械的特性等も必要とされる。

## 【0005】

さらに、一つの燃料電池スタックに使用されるセパレータは数百枚の単位となることから、スタック全体をコンパクト化するために、セパレータの板厚を薄くしても上記特性を保つ必要があり、かつ一枚当たりのコストの低減も急務となっ

ている。

#### 【0006】

しかしながら、従来のセパレータは、多数積層した場合、セパレータ間をパッキングでシールする部位のガスシール性が確保できず、燃料や酸化剤の漏れが発生したり、積層体を締め付ける際に局部的に応力が高くなって破損が生じたり、面内での接触抵抗の不均一が生じ、電池特性が低下するというスタック組立時の健全性に問題が発生していた。

#### 【0007】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は燃料電池スタックの組立健全性に優れた燃料電池用セパレータ及びこれを用いる燃料電池を提供するものである。

#### 【0008】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明は、次のものに関する。

1. 曲げ破断歪みが0.5%以上である燃料電池用セパレータ。
2. 圧縮弾性率が20GPa以下である項1記載の燃料電池用セパレータ。
3. ショア硬度が20～50の範囲である項1又は2記載の燃料電池用セパレータ。
4. 圧縮弾性率が20GPa以下である燃料電池用セパレータ。
5. ショア硬度が20～50の範囲である項4記載の燃料電池用セパレータ。
6. ショア硬度が20～50の範囲である燃料電池用セパレータ。

#### 【0009】

7. セパレータが、リブ部及び平坦部を有する項1～6のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。
8. セパレータが、黒鉛及び樹脂を含む成形体である項1～7のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。
9. 黒鉛が、膨張黒鉛である項8記載の燃料電池用セパレータ。
10. 膨張黒鉛が、膨張黒鉛シート粉碎粉である項9記載の燃料電池用セパレータ。

## 【0010】

11. 樹脂が、熱硬化性樹脂である項8記載の燃料電池用セパレータ。
12. セパレータが、リブ部及び平坦部以外に穴部を有する項1～11記載の燃料電池用セパレータ。
13. 項1～12のいずれかに記載の燃料電池用セパレータを有してなる燃料電池。
14. 固体高分子型である項13記載の燃料電池。

## 【0011】

## 【発明の実施の形態】

本発明における燃料電池用セパレータは、曲げ破断歪みが0.5%以上、好ましくは0.6%以上、さらに好ましくは0.7%～1.5%の範囲とされ、0.5%未満であると、セパレータをスタックに組み立てる際、面内の板厚のばらつきの大きいセパレータは、部分的に極端に変形が大きくなり、破断してしまう可能性が高くなる。

## 【0012】

なお、本発明における燃料電池用セパレータは、その曲げ破断歪みが0.5%以上である場合は、その圧縮弾性率及びショア硬度については特に制限はないが、その圧縮弾性率を20GPa以下とすることが好ましく、15GPa以下とすることがより好ましく、0.5～10GPaの範囲とすることがさらに好ましく、また、ショア硬度を20～50の範囲とすることが好ましく、20～45の範囲とすることがより好ましく、20～40の範囲とすることがさらに好ましい。

## 【0013】

また、本発明においては、曲げ破断歪みが0.5%未満であっても、圧縮弾性率が20GPa以下、好ましくは15GPa以下、さらに好ましくは0.5GPa～10GPaの範囲であるか又はショア硬度が20～50の範囲、好ましくは20～45の範囲、さらに好ましくは20～40の範囲であれば本発明の目的を達成することができる。しかし、上記の範囲から外れた場合、即ち圧縮弾性率が20GPaを超えると荷重がかかる際の変形が生じにくくなるため、スタック組立の際に、板厚ばらつきの大きいセパレータではセパレータ間でのガスシール性が

確保できなくなったり、電極又は隣り合うセパレータとの接触が悪くなり、接触抵抗が大きくなって発電効率が低下し易くなる。

## 【0014】

一方、ショア硬度が20未満であると材質が柔らかくなりすぎるため、スタック組立時に板厚のばらつきが大きいセパレータでは、リブ部に非常に大きな偏荷重がかかり、リブが破損する可能性があり、50を超えると材質が硬すぎて、板厚のばらつきが大きいセパレータに偏荷重がかかってもこれを緩和することができず、電極又は隣り合うセパレータとの接触抵抗が大きくなる。

## 【0015】

本発明における燃料電池用セパレータにおいては、リブ部及び平坦部を有する構造のものが好ましい。リブ部は、導電性又は通電性を有し、セパレータを電解質膜、燃料極及び空気極を介して重ねたときにガスの流路を形成するものである。平坦部は、セパレータの周辺にあり、把持部を形成し、上記の流路をガスが通過するときにはガス漏れしないように構成される。またリブ部は、セパレータを重ねたときに形成された流路をガスが通過するときにはガス漏れしないように構成される。平坦部は、セパレータを重ねたときに全体を固定するための把持部となることが好ましい。

## 【0016】

さらに、本発明になる燃料電池用セパレータは、リブ部及び平坦部以外に穴部を有していてもよく、特に、平坦部内に穴部を有していることが好ましい。穴部は、セパレータを多数重ねたときに、重ね方向に長い穴を形成するように構成され、水素ガス、酸素ガス及び冷却水を通すための穴が形成されるように構成される。そしてそれぞれの穴は、セパレータのリブ部によって形成される水素ガス流路、酸素ガス流路及び冷却水流路と連結されるように構成される。平坦部には、セパレータを重ねたときに固定用のボルトを通るための穴を有していてもよい。本発明における燃料電池用セパレータは、上記において、平坦部のないものであってもよい。

## 【0017】

セパレータの寸法は、燃料電池システムの用途、設計コンセプトに依存するが



、概ね一辺の長さが数 cm から 3 0 cm 程度が一般的であり、板厚は 0. 2 mm ～ 6 mm 程度である。

また、本発明になるセパレータの板厚のばらつきについては、特に制限はないが、健全なスタックを組み上げるためには、板厚の面内ばらつきは、0. 3 mm 以下であることが好ましく、0. 2 mm 以下であることがより好ましく、0. 1 mm 以下であることがさらに好ましく、差が全くないことが最も好ましいとされる。なお、上記の板厚とは、燃料電池用セパレータの厚さ、詳しくは図 2 及び図 4 に示す燃料電池用セパレータの底部（底面）6 から平坦部 3 又はリブ部 1 の頂点までの厚さを指す。

#### 【0018】

本発明における燃料電池用セパレータは、黒鉛と樹脂を含む材料をセパレータ形状に成形して得ることができる。特に黒鉛が樹脂中に分散された構造のものが、電気特性、成形性、ガスの不浸透性の点に優れ、安価であるので好ましい。前記黒鉛としては、特に制限はなくコストを重視するならば、天然黒鉛、人造黒鉛等を使用することが好ましい。使用する黒鉛の粒径に制限はなく、要求特性及び成形性を考慮し粒径の異なる黒鉛を混合して使用することが好ましい。

また、軽量化、機械強度（靱性）、板厚精度を重視する場合、膨張黒鉛を使用することが好ましく、特に膨張黒鉛シート粉碎粉を使用することが好ましい。

#### 【0019】

前記リブ部及び平坦部は、それぞれ膨張黒鉛及び樹脂を含む層を有し、これらの層が連続している層であることが好ましい。これにより、セパレータを得るための成形時の成形性が良好であり、セパレータに軽量性を付与し、またセパレータに高靱性、低弾性という好ましい特性を付与する。

#### 【0020】

本発明で好ましいものとして使用される膨張黒鉛は、原料黒鉛を、酸性物質及び酸化剤を含む溶液中に浸漬して黒鉛層間化合物を生成させる工程及び前記黒鉛層間化合物を加熱して黒鉛結晶の C 軸方向を膨張させて膨張黒鉛とする工程により製造することができる。これにより膨張した黒鉛が虫状形となり方向性のない複雑に絡み合った形態となる。

## 【 0 0 2 1 】

膨張黒鉛の倍率は、セパレータの強度とシール性を確保するため高い方が好ましく、特に制限はないが150倍以上であることが好ましく、150倍～300倍であることがさらに好ましい。

この膨張黒鉛を粉碎することにより膨張黒鉛粉とすることができ、粉碎の前に、得られた膨張黒鉛に圧力を加えシート状に圧縮成形して膨張黒鉛シートとすることが好ましい。さらに得られた膨張黒鉛粉には、必要に応じて、その粉碎粉に含まれる酸性根を低減させるための処理（高温処理など）を施す。

## 【 0 0 2 2 】

前記の原料黒鉛としては特に制限はないが、天然黒鉛、キッシュ黒鉛、熱分解黒鉛等の高度に結晶が発達した黒鉛が好ましいものとして挙げられる。得られる特性と経済性のバランスを考慮すると天然黒鉛が好ましい。用いる天然黒鉛としては、特に制限はなく、F48C（日本黒鉛(株)製、商品名）、H-50（中越黒鉛(株)製、商品名）等の市販品を用いることができる。これらは、鱗片状の粉末の形態で使用する事が好ましい。

## 【 0 0 2 3 】

原料黒鉛の処理に用いられる酸性物質は、一般に硫酸などの黒鉛の層間に進入して十分な膨張能力を有する酸性根（陰イオン）を発生することができるものが使用される。酸性物質の使用量については特に制限はなく、目的とする膨張倍率で決定され、例えば、黒鉛100重量部に対して100～1000重量部使用するのが好ましい。

## 【 0 0 2 4 】

また、酸性物質と共に用いられる酸化剤としては、過酸化水素、過塩素酸カリウム、過マンガン酸カリウム、重クロム酸カリウム等の過酸化物、また硝酸などの酸化作用のある酸を用いることができ、良好な膨張黒鉛を得やすいという観点から過酸化水素が特に好ましい。酸化剤として過酸化水素を用いる場合、水溶液として用いることが好ましく、このとき、過酸化水素の濃度については特に制限はないが、20重量%～40重量%が好ましい。その使用量についても特に制限はないが、黒鉛100重量部に対して過酸化水素水として5重量部～60重量部

配合することが好ましい。

【0025】

酸性物質及び酸化剤は、水溶液の形態で使用することが好ましい。

酸性物質としての硫酸は、適宜の濃度で使用するが、95重量%以上の濃度のものが好ましく、濃硫酸を使用することが特に好ましい。

【0026】

前記において、膨張黒鉛シートの製法についても特に制限はないが、一般的には上記で得た膨張黒鉛を、プレス、ロール等で圧力を加えてシート化することが好ましい。膨張黒鉛をシート化したときのシートの厚さ及び嵩密度については特に制限はないが、厚さが0.5mm～1.5mmの範囲及び嵩密度が $0.2\text{ g/cm}^3 \sim 1.7\text{ g/cm}^3$ の範囲のものが好ましい。厚さが0.5mm未満であると得られる成形体が脆くなる傾向があり、1.5mmを超えると成形性が悪くなる傾向がある。また嵩密度が $0.2\text{ g/cm}^3$ 未満であると電気抵抗が悪化する傾向があり、 $1.7\text{ g/cm}^3$ を超えるとシート作製時に膨張黒鉛が凝集破壊を起こし易く粉砕して使用した場合、機械強度が低下する傾向がある。なお密度の大きさは、加圧量、ロールギャップ等の調整により、調整することができる。

また、膨張黒鉛シートの粉砕は、粗粉砕及び微粉砕により行うことが好ましく、この後、必要に応じて分級を行う。

【0027】

本発明において、原料としての膨張黒鉛の嵩密度については特に制限はないが、 $0.1\text{ g/cm}^3 \sim 0.4\text{ g/cm}^3$ の範囲が好ましい。膨張黒鉛の密度が小さすぎると、樹脂との均一混合性が低下し、燃料電池用セパレータのガス不透過性が低下する傾向があり、膨張黒鉛の密度が大きすぎると燃料電池用セパレータの機械的強度及び導電性の向上効果が低下する傾向がある。

【0028】

膨張黒鉛シート粉砕粉の平均粒径についても特に制限はないが、樹脂との混合性及び成形性を考慮すると、数平均粒径で $25\text{ }\mu\text{m} \sim 500\text{ }\mu\text{m}$ の範囲が好ましく、 $50\text{ }\mu\text{m} \sim 400\text{ }\mu\text{m}$ の範囲がさらに好ましい。粒径が $25\text{ }\mu\text{m}$ 未満であると膨張黒鉛粉の絡み合いの効果が少なくなり、セパレータの強度低下が起こり易

くなる傾向があり、一方、粒径が $500\mu\text{m}$ を超えると幅の狭いリブへの膨張黒鉛の流れ性が悪化し、平板が薄くリブの高さが高いセパレータの成形が困難となる傾向がある。

## 【0029】

本発明において、使用する樹脂の性状に特に制限はないが、安全性、製造工程の短縮（低コスト）等を考慮すると、乾式混合（無溶剤混合）が可能であり、かつ粒度分布が安定した熱硬化性樹脂、高耐熱性樹脂又は熱可塑性樹脂を用いることが好ましい。樹脂の使用形態としては粉末状、粒状等が好ましい。

## 【0030】

また、使用する樹脂の化学構造及び種類に制限はなく、例えば、エポキシ樹脂（硬化剤が併用される）、メラミン樹脂、硬化性アクリル樹脂、レゾールタイプ及びノボラック型の粉末状フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂、粉末状ポリアミド樹脂、粉末状ポリアミドイミド樹脂、フェノキシ樹脂、アクリル樹脂等の高耐熱性樹脂又は熱可塑性樹脂が使用される。熱硬化性樹脂には必要に応じて、硬化剤、硬化促進剤等が併用して使用される。硬化剤及び硬化促進剤の使用形態は、粉末状、粒状等が好ましい。

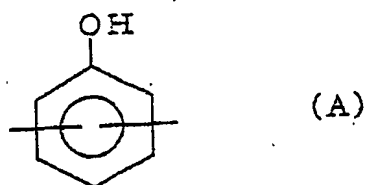
これらの樹脂の中で、経済性、作業性、硬化後の特性バランスが優れることから、熱硬化性樹脂であるフェノール樹脂を用いることが好ましい。

## 【0031】

フェノール樹脂としては、粉体特性として粒径が均一であり、またブロッキング（粉の凝集）が少なく、反応時に発生ガスが少なく成形が容易であり、熱処理が短時間で終了する等の特長を備えたフェノール樹脂が好ましく、中でも開環重合により重合するジヒドロベンゾオキサジン環を含むフェノール樹脂〔一般式（A）及び（B）に示す化学構造単位を有する〕を用いることが好ましい。

## 【0032】

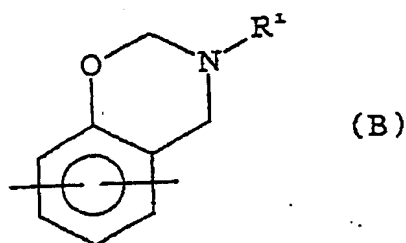
## 【化1】



(式中、芳香環に結合する水素はヒドロキシル基のオルト位の1つを除き、炭素数1～3のアルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルコキシル基で置換されたフェニル基等の炭化水素基で置換されていてもよい)。

【0033】

## 【化2】



(式中、 $R^1$  は、炭素数1～3のアルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルコキシル基で置換されたフェニル基等の炭化水素基であり、芳香環に結合する水素は、同様の炭化水素基で置換されていてもよい)。

【0034】

樹脂として粉末状フェノール樹脂を用いる場合、その粒度分布に特に制限はないが、膨張黒鉛シート粉碎粉との乾式法により短時間で、均一に混合できる混合性と、成形時の樹脂流れを考慮すると、数平均粒径で $1\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ の範囲が好ましく、 $5\mu\text{m} \sim 50\mu\text{m}$ の範囲がさらに好ましい。

【0035】

本発明で使用する膨張黒鉛と樹脂との混合割合は、目標とする最終成形体である燃料電池用セパレータの諸特性の値を考慮して決定されるが、通常混合比率で膨張黒鉛／樹脂＝ $95/5 \sim 30/70$  (重量比) の範囲が好ましく、 $90/10$

0～50/50（重量比）の範囲がより好ましく、85/15～60/40（重量比）の範囲がさらに好ましい。ここで膨張黒鉛と樹脂との混合比率が95/5を超える場合、機械強度が急激に低下する傾向があり、一方、30/70未満の場合、導電性物質である膨張黒鉛の添加量が少なく、電気特性が悪化する傾向がある。

#### 【0036】

膨張黒鉛と樹脂の混合方法に特に制限はなく、膨張黒鉛の微粉化を防止する点で混合時の膨張黒鉛に大きな剪断力が加わらないシェイカー、Vブレンダー等を使用した乾式混合方法によることが好ましい。混合時に膨張黒鉛が微粉化した場合、得られる燃料電池用セパレータの機械強度が急激に低下する傾向がある。

#### 【0037】

また、燃料電池用セパレータへの成形に際し、上記混合粉を直接、成形材料粉として成形に供することができるが、さらなる混合性の向上と成形時の作業性を向上させるために、混合粉を加圧成形しシート状にしたもの（以下、「成形用シート」という）を成形に供することが好ましい。

#### 【0038】

成形用シートの製造法に特に制限はないが、例えば混合物投入タンク、材料を一定厚さにするゲート調整機、一定幅に仕上げるスリッター、前記加工材料を移送する移送装置、シート化する圧延ロール等から構成される成形用シートの製造装置等を使用することができる。平坦部に穴部を有する場合、成形用シートに穴部が形成されているようにすると好ましい。

#### 【0039】

成形用シートは、その強度を向上させるために成形用シートに含まれる樹脂の硬化反応を部分的に進めるか、部分的に（完全にではなく）熱溶融させてからセパレータの製造に供することができる。硬化反応又は熱溶融させる方法に制限はないが、例えば、得られた成形用シートを加熱する方法、さらに具体的には前記の圧延ロールを加熱装置が付属されたものとし、この圧延ロールを通すときに加熱する方法、得られた成形用シートを加熱オーブンに通す方法等がある。

#### 【0040】

前記、燃料電池用セパレータを得るための成形方法については特に制限はないが、成形機のコスト、得られる成形体の板厚精度、電気特性及び機械特性を決定する樹脂中における膨張黒鉛粉の最適な配向等を考慮すると圧縮成形法が好ましい。

#### 【0041】

なお成形する際、一般にリブ部と平坦部で、単位面積当たりの原料の装填量が同じ場合、平坦部の嵩密度は低くなる。このためリブ部及び平坦部の嵩密度を同時に上記の範囲にするためには、材料の装填量を変える必要があり、例えば、必要に応じて成形体の平坦部の形状に合わせた成形用シートを追加したり又は強度向上の役割も兼ねたガラスクロスなどの補強シートを成形用シートに重ね合わせて使用してもよい。

#### 【0042】

得られる燃料電池用セパレータの嵩密度については特に制限はないが、例えば、平坦部の嵩密度は $1.35\text{ g/cm}^3$ 以上が好ましく、 $1.40\text{ g/cm}^3 \sim 1.75\text{ g/cm}^3$ の範囲がさらに好ましい。またリブ部の嵩密度は $1.35\text{ g/cm}^3$ 以上が好ましく、 $1.45\text{ g/cm}^3 \sim 1.75\text{ g/cm}^3$ の範囲がさらに好ましい。上記の嵩密度を有することにより十分な機密性を保つことができると共に、板厚精度に優れるので好ましい。

#### 【0043】

本発明において、燃料電池用セパレータの曲げ破断歪みを0.5%以上、圧縮弾性率を20GPa以下又はショア硬度を20～50の範囲にするためには、例えば、原料として使用する膨張黒鉛シート粉碎粉などの成形材料の粒径とそれに見合った樹脂の配合割合、成形用金型への成形材料と樹脂の混合物の装填量、成形圧力等を調整して適切な条件を見い出すことにより達成できる。

#### 【0044】

燃料電池は、本発明におけるセパレータにより、固体高分子電解質膜などからなる電解質層及びこれを挟むようにして形成されるセルを必要数積層された構造を有する。本発明におけるセパレータは、電解質の種類によって分類されるアルカリ形、固体高分子形、リン酸形、熔融炭素塩形、固体酸形等の燃料電池のセパ

レータとして使用でき、特に固体高分子形燃料電池に使用することが好ましい。

【0045】

上記に示すような構造にすることにより、組立健全性に優れる他、板厚精度、ガス不透過性、電気特性、機械強度等についても問題のない燃料電池用セパレータ及び燃料電池が得られる。

【0046】

以下、本発明の実施例の形態を図面により説明する。

図1は、本発明の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示す平面図、図2は、図1のX-X断面図、図3は、本発明の他の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示す平面図及び図4は、図3のY-Y断面図で、1はガスと冷却水の供給路を確保するためのリブ（溝）を有するリブ部、2はガスと冷却水を供給するための穴部、3は平坦部、4は突起部、5は溝部及び6は底部（底面）である。

【0047】

【実施例】

以下、実施例により本発明を説明する。

実施例1

(1) 成形用混合粉の製造

板厚が1.0mm及び密度が $1.0\text{ g/cm}^3$ の膨張黒鉛シート（日立化成工業（株）製、商品名カーボフィットHGP-105）を粗粉碎機及び微粉碎機で粉碎し、目開き $425\mu\text{m}$ のフルイを通して粗粉を除去し、平均粒径が $250\mu\text{m}$ の膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。この膨張黒鉛シート粉碎粉と前記一般式（A）及び（B）に示す化学構造単位を有する数平均粒径が $20\mu\text{m}$ の粉末状フェノール樹脂（日立化成工業（株）製、商品名HR1060）を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂が70：30の割合で配合し、Vブレンダーで乾式混合して混合粉を得た。

【0048】

(2) 燃料電池用セパレータの製造

次に、図1、図2、図3及び図4に示す形状の燃料電池用セパレータを得るた



めに金型を使用した。このうち図1及び図2に示す形状のセパレータを得るための下型〔成形後図1のB面（裏面）となる部分〕を、成形面（縦、横200mm）が平坦な雌型とし、上型〔成形後図1のA面（表面）となる部分〕を、突起部を有する雄型とした。ただし、上型は、成形後リブの高さが0.6mm、リブピッチが2mm、リブの幅が2mm及びリブテーパが10度になるような形状とした。

。なおリブ部1が形成される領域は中央部の150mm×150mmとした。

#### 【0049】

一方、図3及び図4に示す形状のセパレータを得るための下型〔成形後図3のB面（裏面）となる部分〕及び上型〔成形後図3のA面（表面）となる部分〕の両金型を突起部を有する雄型とした。このうち下型は、成形後リブの高さが0.6mm、リブピッチが6mm、リブの幅が6mm及びリブテーパが10度になるような形状とした。また上型は、図1及び図2に示す形状のセパレータを得るための上型と同じ形状とした。

#### 【0050】

（1）で得た混合粉を圧延ロールを有するシート成形機を用いて成形し、単位面積当たりの重量が $0.23\text{ g/cm}^2$ で、寸法が200mm×200mm及び厚さが5mmの成形用シートを得た。

また、上記と同様のシート成形機を用いて単位面積当たりの重量が $0.09\text{ g/cm}^2$ で、寸法が200mm×200mm及び厚さが5mmの成形用シートを作製し、その中央部の150mm×150mmの領域をくり抜いた。

#### 【0051】

この後、図1及び図2に示す形状のセパレータを得るための下型を180℃に加熱し、この下型に前記で得た成形用シートを1枚載置した後、さらにその上に中央部をくり抜いた成形用シートを1枚載置した。その後、その上部に上型の突起部を有する部分を下に向けてセットし、得られる成形体の板厚が1.9mmになるような条件、即ち180℃、面圧19.6MPa（ $2 \times 10^6\text{ kg/m}^2$ ）の条件で10分間成形し、次いで、平坦部3の6カ所に穴部2を簡易打ち抜き機で打ち抜いて図1及び図2に示す形状の燃料電池用セパレータ（ア）を52枚得

た。なお図1及び図2において、4は突起部及び5は溝部である。

#### 【0052】

一方、図3及び図4に示す形状の燃料電池用セパレータ（イ）52枚も前記と同様の工程を経て得た。燃料電池用セパレータ（イ）の板厚は2.0mmであった。

また、得られた燃料電池用セパレータ（ア）のリブ部の嵩密度は1.44 g/cm<sup>3</sup>及び平坦部の嵩密度は1.68 g/cm<sup>3</sup>、燃料電池用セパレータ（イ）のリブ部の嵩密度は1.58 g/cm<sup>3</sup>及び平坦部の嵩密度は1.60 g/cm<sup>3</sup>であった。なお、以下の実施例及び比較例において、燃料電池用セパレータ（ア）及び（イ）の板厚、リブ部の嵩密度及び平坦部の嵩密度は上記と同じ値である。

#### 【0053】

##### 実施例2

実施例1の（1）で得た膨張黒鉛シート粉碎粉を、さらに目開き180μmのフルイを通して粗粉を除去し、平均粒径が130μmの膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。以下実施例1と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ（ア）及び燃料電池用セパレータ（イ）を、各々52枚ずつ得た。

#### 【0054】

##### 実施例3

実施例1の（1）で得た膨張黒鉛シート粉碎粉を、さらに目開き106μmのフルイを通して粗粉を除去し、平均粒径が83μmの膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。以下実施例1と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ（ア）及び燃料電池用セパレータ（イ）を、各々52枚ずつ得た。

#### 【0055】

##### 実施例4

実施例1で得た平均粒径が250μmの膨張黒鉛シート粉碎粉と実施例1で用いた粉末状フェノール樹脂を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂を75：25の割合で配合し、Vブレンダーで乾式混合して混合粉を得た以外は、実施例1と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ（ア）及び燃料電池用

セパレータ (イ) を、各々 5 2 枚ずつ得た。

【0 0 5 6】

#### 比較例 1

実施例 2 で得た平均粒径が  $130\ \mu\text{m}$  の膨張黒鉛シート粉碎粉と実施例 1 で用いた粉末状フェノール樹脂を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂を 6 5 : 3 5 の割合で配合し、V ブレンダーで乾式混合して混合粉を得た以外は、実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (ア) 及び燃料電池用セパレータ (イ) を、各々 5 2 枚ずつ得た。

【0 0 5 7】

#### 比較例 2

実施例 3 で得た平均粒径が  $83\ \mu\text{m}$  の膨張黒鉛シート粉碎粉と実施例 1 で用いた粉末状フェノール樹脂を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂を 6 5 : 3 5 の割合で配合し、V ブレンダーで乾式混合して混合粉を得た以外は、実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (ア) 及び燃料電池用セパレータ (イ) を、各々 5 2 枚ずつ得た。

【0 0 5 8】

次に、前記の各実施例及び各比較例で得た燃料電池用セパレータ (ア) 及び燃料電池用セパレータ (イ) の全数について、縦、横 4 点ずつ合計 1 6 点について、マイクロメータを用いて板厚を測定し、1 枚のセパレータ面内での板厚のばらつき (最大厚さと最小厚さの差) を求めた。これら 1 0 0 枚のセパレータのばらつきの平均値と最大値及び最小値を表 1 に示す。

【0 0 5 9】

また、前記の各実施例及び各比較例で得た燃料電池用セパレータ (ア) 及び燃料電池用セパレータ (イ) を各々 2 枚ずつ使い、各セパレータの平坦部から、 $50\text{mm} \times 10\text{mm}$  の試片を 5 枚及び  $20\text{mm} \times 20\text{mm}$  の試片を 2 枚作製し、以下に示す特性を求めた。

【0 0 6 0】

上記の試片のうち  $50\text{mm} \times 10\text{mm}$  の試片を用いて、オートグラフ (島津製作所製 S-500) により支点間距離  $40\text{mm}$  で 3 点曲げ試験を行い、破断時の

変形量から治具、装置の歪み量を除いて曲げ破断歪みを算出した。なお参考値として曲げ強度も求めた。またD型ショア硬度計（仲井精機製作所製）を使用し、上記破断後の試片についてのショア硬度を求めた。

#### 【0061】

次に、上記のオートグラフを使用し、20mm×20mmの試片について圧縮試験を実施し、荷重に対する変形量の関係を求めた。この変形量から治具、装置の歪み量を除いて圧縮弾性率を算出した。これらの特性をまとめて表1に示す。

#### 【0062】

また、前記の各実施例及び各比較例で得た燃料電池用セパレータ（ア）及び燃料電池用セパレータ（イ）を用いて燃料電池を組立て、電池特性を確認した。

まず、白金触媒を担持したカーボン粉及びパーフルオロスルホン酸粉末をエタノールに分散させてペーストを作製し、これをカーボンペーパーに均一に塗布し電極触媒層を形成した。このペーストを塗布したカーボンペーパー2枚を150mm角に切断し、ペースト面が内側になるようにして厚さ50 $\mu$ mのパーフルオロスルホン酸膜（デュポン社製、商品名ナフィオン）を挟み込み、加熱しながら圧着して膜電極複合体（MEK）を製作した。

#### 【0063】

次に、各実施例及び各比較例で得た図1及び図2に示す形状の燃料電池用セパレータ（ア）並びに図3及び図4に示す形状の燃料電池用セパレータ（イ）を各々50枚用い、前記MEKを図1に示す燃料電池用セパレータ（ア）のA面（表面）と図3に示す燃料電池用セパレータ（イ）のA面（表面）の間に挟み込み、両セパレータのリブ部1及び穴部2周辺を液体パッキン（シリコーンゴム）でシールし、単セルを50セット作製した。

#### 【0064】

次いで、得られた50セットの単セルを、外側面である図1に示す燃料電池用セパレータ（ア）のB面（裏面）と隣り合う図3に示す燃料電池用セパレータ（イ）のB面（裏面）のリブ部1及び穴部2周辺を液体パッキン（シリコーンゴム）でシールしながら積層し、積層体の上下を剛性のある板で挟み込み、500KPaの面圧をかけて固定し、電池特性確認用のスタックを得た。

## 【0065】

このようにして得られた電池特性確認用のスタックに穴（マニホールド）部2を通じて水素ガス、空気及び冷却水を供給し、80℃に保持して0.4mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で100時間の運転を行い、各単セルのそれぞれの出力電圧を測定した。表1に100時間経過後の50セル中の最大電圧と最小電圧を示す。なお、スタック組立中に破壊した比較例1及び比較例2については電圧の測定は行わなかった。

## 【0066】

【表1】

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2
曲げ破断歪み (%)		0. 6 7	0. 7 5	0. 6 3	0. 5 6	0. 8 2	0. 4 8
圧縮弾性率 (G P a)		1 9	9	1 9	1 8	7	2 4
ショア硬度 (－)		3 6	2 4	4 2	4 8	1 8	5 5
曲げ強度 (M P a)		5 2	4 4	7 7	6 5	3 7	7 1
組 立 健 全 性		良好	良好	良好	良好	※ 1	※ 2
単セルの 電圧 (V)	最大電圧	0. 7 5	0. 7 7	0. 7 4	0. 7 3	—	—
	最小電圧	0. 7 3	0. 7 6	0. 7 1	0. 6 6	—	—

※1 破壊（1リブ圧縮変形）

※2 破壊（割れ）

## 【0067】

表1に示されるように、本発明になる実施例1～4のセパレータは、板厚のばらつきが少なく、曲げ破断歪み、圧縮弾性率、ショア硬度及び曲げ強度に問題はなく、かつ100時間の運転に対しても高い出力を安定して供給でき、また電池スタックの組立保全性についても何ら問題がないことが明らかである。これに対し、比較例1～2のセパレータは、板厚のばらつきは少なく実施例1～4のセパレータと比較してもほとんど差が見られなかったが、比較例1のセパレータは、ショア硬度及び曲げ強度が低いという欠点が生じ、また比較例2のセパレータは、圧縮弾性率及びショア硬度が高く、曲げ破断歪みが低いという欠点が生じていた。

【0068】

【発明の効果】

本発明の燃料電池用セパレータは、組立健全性に優れ、かつ安価な燃料電池用セパレータである。

また、本発明の燃料電池は、組立健全性に優れ、かつ安価な燃料電池用セパレータを有する高性能な燃料電池である。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示すである。

【図2】

図1のX-X断面図である。

【図3】

本発明の他の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示すである。

【図4】

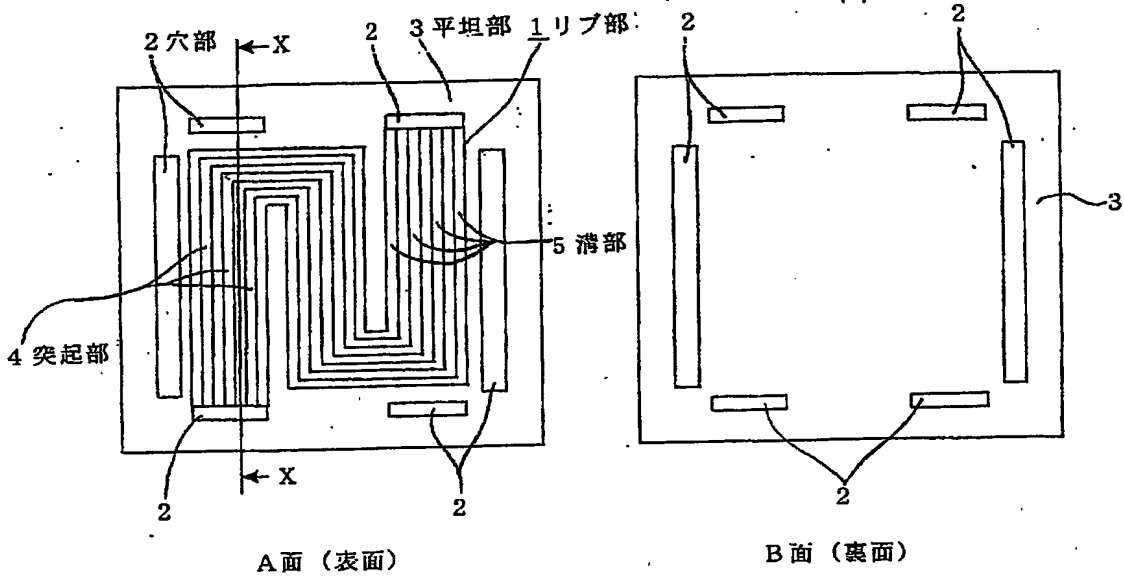
図3のY-Y断面図である。

【符号の説明】

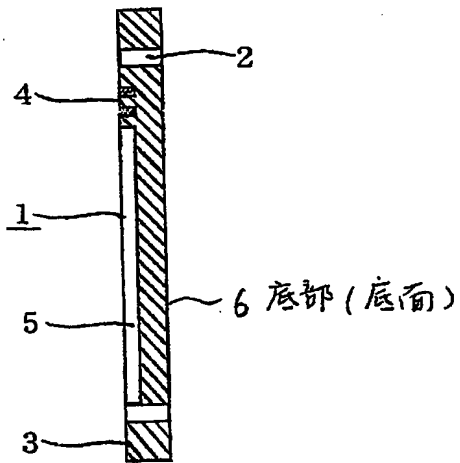
- 1 リブ部
- 2 穴部
- 3 平坦部
- 4 突起部
- 5 溝部
- 6 底部（低面）

【書類名】 図面

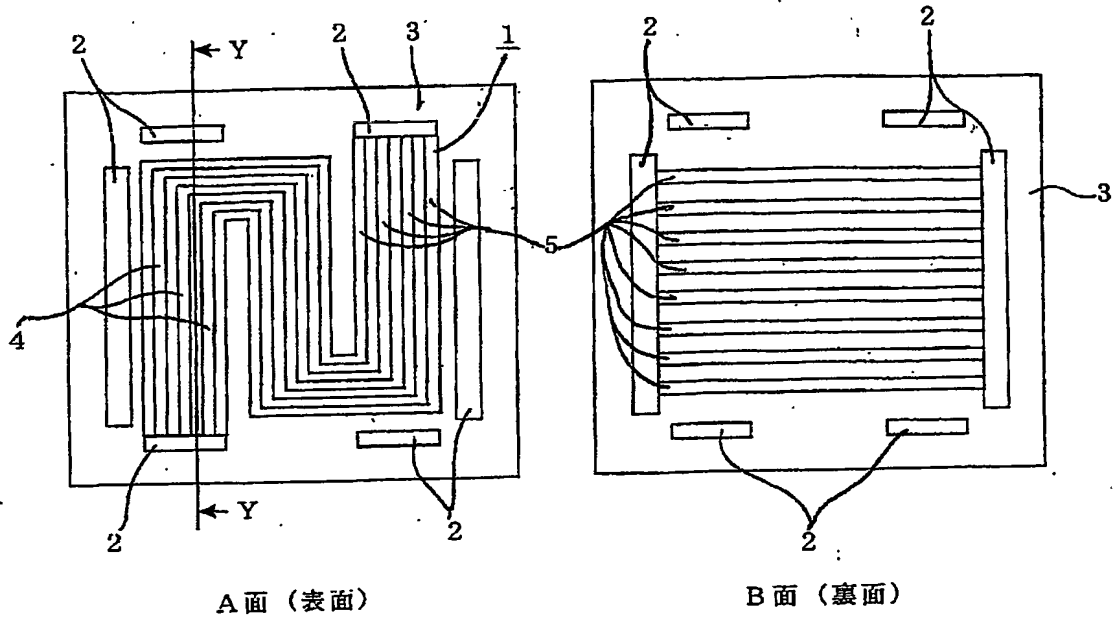
【図1】



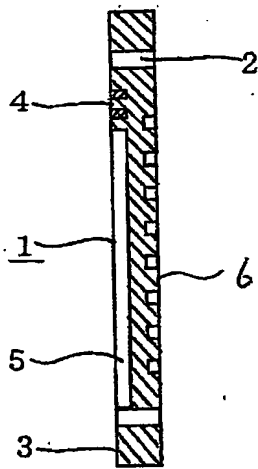
【図2】



【図3】



【図4】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池スタックの組立健全性に優れた燃料電池用セパレータ及びこれを用いる燃料電池を提供する。

【解決手段】 曲げ破断歪みが0.5%以上である燃料電池用セパレータ。

【選択図】 なし。

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000004455]

1. 変更年月日 1993年 7月27日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

氏 名 日立化成工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**